This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

WELTORGANISATION FUR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Buro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

H01M 8/06, 8/04

A2

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 97/21257

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

12. Juni 1997 (12.06.97)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE96/02237

(22) Internationales Anmeldedatum:

21. November 1996

(21.11.96)

(30) Prioritätsdaten:

195 45 186.4

4. December 1995 (04.12.95)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE], Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).

(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): VOLLMAR, Horst [DE/DE]; Klosterwaldstrasse 8, D-91074 Herzogenaurach (DE). EDELMANN, Heiner [DE/DE]; Geiwitzenweg 20, D-91085 Weisendorf (DE). SCHREPFER, Wolfgang [DE/DE]; Am Weihersbach 19, D-91074 Herzogenaurach (DE). NÖLSCHER, Christoph [DE/DE]; Wielandstrasse 6, D-90419 Nürnberg (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: JP, NO, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht

Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

(54) Title: METHOD OF OPERATING A HIGH-TEMPERATURE FUEL CELL SYSTEM AND HIGH-TEMPERATURE FUEL CELL **SYSTEM**

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUM BETREIBEN EINER HOCHTEMPERATUR-BRENNSTOFFZELLENANLAGE UND HOCHTEMPERATUR-BRENNSTOFFZELLENANLAGE

(57) Abstract

The invention concerns a method of operating a hightemperature fuel cell system (2) comprising a high-temperature fuel cell module (4) with an anode part (20) and a cathode part (22). The fuel gas necessary for the electrochemical reaction is generated by a gas reforming process, more hydrogen (H₂) being generated than is consumed during the electrochemical reaction in the high-temperature fuel cell module (4). The hydrogen (H2) not consumed in the high-temperature fuel cell module (4) is made available for further use outside the hightemperature fuel cell module (4). Owing to this measure, the efficiency of the high-temperature fuel cell system (2) is optimized.

(57) Zusammenfassung

Bei dem vorliegenden Verfahren zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2), die ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) mit einem Anoden- (20) und einem Kathodenteil (22) wird das für die elektrochemische Reaktion erforderliche Brenngas durch einen Reformierungsprozeß erzeugt,

wobei mehr Wasserstoff H2 erzeugt wird als bei der elektrochemischen Reaktion in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) verbraucht wird, und der in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) nicht verbrauchte Wasserstoff H2 für eine weitere Nutzung außerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls (4) vorgesehen ist. Durch diese Maßnahme wird die Effektivität der Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) optimiert.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Osterreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien .	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	N7.	Neuseeland
BF	Burkina Faso	1E	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ-	- Benin	JP	Japan	RO	Rumanien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CI,	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SC	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
СН	Schweiz .	น	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	1.iberia	SZ	Swasiland
CN	China	LK	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV'	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	77	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
F.S	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolci	UZ.	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

1

Beschreibung

5

20

25

30

Verfahren zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage und Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage

Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage und Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage.

Zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage werden kohlenwasserstoffhaltige Brennstoffe, beispielsweise Erdgas, Heizöl, Naphta oder Biogas, verwendet. Diese Brennstoffe müssen in der Regel für den Betrieb der zu Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodulen zusammengefaßten Hochtemperatur-Brennstoffzellen in geeigneter Weise aufbereitet, d. h. reformiert werden.

Die kohlenwasserstoffhaltigen Brennstoffe durchlaufen dabei vor der elektrochemischen Reaktion in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul nach einer Befeuchtung einen Reformierungsprozeß, bei dem als gasförmige Reformationsprodukte CO, H2, CO2 und H2O entstehen. Die auch als Reformat bezeichneten gasförmigen Reformationsprodukte bilden nunmehr das geeignete Brenngas für den Betrieb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls.

Der Prozeß der Reformierung kann dabei extern oder intern, d. h. außerhalb oder innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls, mit oder ohne Nutzung des Wärmeinhaltes eines Anodenabgases des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls erfolgen.

Eine interne Reformierung ist beispielsweise aus dem Bericht "Verfahrenstechnik der Hochtemperaturbrennstoffzelle" von E.

2

Riensche, VDI-Berichte 1174 (1995), Seiten 63 bis 78, bekannt, bei der die Abwärme mit großem Wärmeinhalt, welche bei der elektrochemischen Verbrennung in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul entsteht, für die interne Reformierung des Brenngases verwendet wird. Erfolgt die Reformierung in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul aber außerhalb eines Anodenteils, so wird dies als indirekte interne Reformierung bezeichnet. Eine Reformierung im Anodenteil wird dementsprechend direkte interne Reformierung genannt.

10

15

20

25

Die für einen externen Reformierungsprozeß aus dem Stand der Technik, insbesondere aus dem Bericht "Erzeugung und Konditionierung von Gasen für den Einsatz in Brennstoffzellen", von K.H. van Heek, VDI-Berichte 1174 (1995), Seiten 97 bis 116, bekannten externen Reformer sind so ausgelegt und konstruiert, daß gerade soviel Brenngas reformiert wird, wie für den Umsatz in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul für die elektrochemische Verbrennung benötigt wird. Diese Auslegung gilt ebenfalls bei direkter bzw. indirekter interner Reformierung.

Weitere Brennstoffzellenanlagen, die jeweils aus wenigstens einem aus Einzelzellen zusammengesetzten Brennstoffzellenstapel bestehen, d. h. einen modulartigen Aufbau besitzen, und einen Anoden- und einen Kathodenteil aufweisen, wobei das für die elektrochemische Reaktion erforderliche Brenngas mittels eines Reformierungsprozesses erzeugt wird, sind aus den Deutschen Offenlegungsschriften 43 30 623 und 40 32 652 sowie aus der Europäischen Patentanmeldung 0 430 017 bekannt.

30

Die aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlagen sind somit für eine optimal hohe Brenngasausnutzung in der elektrochemischen Reaktion ausgelegt. Das reformierte Brenngas wird somit ausschließlich zum Zwecke der

PCT/DE96/02237 WO 97/21257

Nutzung innerhalb der Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage verwendet.

Durch diese Auslegung existiert ein Konzentrationsgefälle des Brenngases über die gesamte aktive Fläche für die elektroche-5 mische Reaktion innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls. Diese Abreicherung des Brenngases über die aktive Fläche bis zum Ausgang des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls kann bis zu 80-90% betragen. Infolge dieser Abreicherung kommt es zu einer Diffusionshemmung innerhalb des Elektrolyten des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls, was wiederum zu erheblichen Einbußen der Leistungsdichte des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls führt.

Der Erfindung liegt somit die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren 15 zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage anzugeben, bei dem die Effektivität einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage optimiert wird. Außerdem sollen Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlagen zur Durchführung des Verfahrens angegeben werden. 20

Die erstgenannte Aufgabe wird gemäß der Erfindung gelöst durch ein Verfahren zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage, die ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul mit einem Anoden- und einem Kathodenteil umfaßt, wobei das für die elektrochemische Reaktion erforderliche Brenngas durch einen Reformierungsprozeß erzeugt wird, wobei mehr Wasserstoff H2 erzeugt wird, als bei der elektrochemischen Reaktion in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul verbraucht wird, und der in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul 30 nicht verbrauchte Wasserstoff H_2 für eine weitere Nutzung außerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls vorgesehen ist.

25

4

Die zweitgenannte Aufgabe wird gemäß der Erfindung gelöst durch eine Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage, die wenigstens ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul mit einem Anoden- und einem Kathodenteil umfaßt, bei der eine als Speicher für den überschüssigen Wasserstoff H₂ vorgesehene Vorrichtung in einem Abweg des Anodenteils angeordnet ist.

Die zweitgenannte Aufgabe wird gemäß der Erfindung außerdem gelöst durch eine Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage, die wenigstens ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul mit einem Anoden- und einem Kathodenteil umfaßt, bei der eine als Verbraucher vorgesehene Vorrichtung in einem Abweg des Anodenteils angeordnet.

- Der aus der Reformierung direkt entstandene überschüssige 15 Wasserstoff H2 wird mit diesem Speicher beispielsweise weiteren mobilen oder stationären Anlagen, die Wasserstoff H_2 zum Betrieb benötigen, zugeführt. Außerdem kann der Wasserstoff H₂ direkt ohne Verwendung eines zusätzlichen Speichers in den Verbraucher eingespeist werden. Bei dem Verbraucher 20 kann es sich beispielsweise um alle möglichen Verwendungen in verschiedenen Industriezweigen handeln, beispielsweise in der chemischen Industrie, bei denen Wasserstoff H2 verwendet wird. Da die Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage den Speicher bzw. den Verbraucher bei der Auslegung des Wirkungsgrades umfaßt, wird somit die Effektivität, d. h. mit anderen Worten der Wirkungsgrad, der gesamten Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage verbessert.
- Außerdem wird zugleich die Leistu sdichte des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls optimiert, da durch die hohe Konzentration des Brenngases über die gesamte aktive Fläche des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls die elektrische Leistungsdichte höher ist als bei den aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlagen, die auf ei-

5

ne hohe Brenngasausnutzung im Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul ausgelegt sind. Bei den bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlagen existiert durch die Abreicherung des Brenngases, die bis hin zu einem Abweg des Anodenteils zwischen 80 und 90% betragen kann, eine Diffusionshemmung, die zu erheblichen Leistungseinbußen führt.

5

10

20

25

30

Außerdem muß bei dem Verfahren gemäß der Erfindung das Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul nicht auf einen hohen Zellwirkungsgrad ausgelegt werden. Es kann stattdessen eine unter Umständen deutlich niedrigere Zellspannung und damit eine wesentlich erhöhte Leistungsdichte als in einer auf Stromerzeugung optimierten Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage gewählt werden, beispielsweise 0,5 bis 0,7V Zellspannung anstatt 0,8V Zellspannung. Aufgrund dieser beiden Effekte ist also für eine vorgegebene elektrische Leistung weniger aktive Fläche notwendig, als bei bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlagen. Die durch den bei erniedrigter Zellspannung verminderten elektrischen Wirkungsgrad entstehende erhöhte Abwärme kann dann beim vorliegenden Verfahren im wesentlichen für zusätzliche Reformierung verwendet werden 🤄 Durch diese Maßnahme kann eine Kühlung des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls, die im Stand der Technik mit bis zu 10facher Überschußluft durchgeführt wird, reduziert werden. Der Luftdurchsatz bleibt auf die für die elektrochemische Reaktion in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul notwendige Menge begrenzt. Luftgebläse, Luftwärmetauscher und Luftkanåle werden entsprechend kleiner dimensioniert, wodurch der apparative Aufwand verringert und zusätzlich Kosten eingespart werden.

Vorzugsweise werden wenigstens 30% der Brenngasleistung zum Erzeugen des nicht verbrauchten Wasserstoffes $\rm H_2$ verwendet.

6

Insbesondere wird der Wärmeinhalt aus der elektrochemischen Verbrennung im Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul zum Reformieren des Brenngases verwendet.

Insbesondere wird das Brenngas innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls reformiert. Dadurch wird der Wärmeinhalt der elektrochemischen Verbrennung ohne zusätzliche externe Leitungen für eine Übertragung des Wärmeinhaltes direkt der Reformation zugeführt.

10

15

20

25

30

35

In einer weiteren Ausgestaltung wird das Brenngas vor dem Eintreten in das Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul reformiert. Ein außerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls angeordneter Reformer wird hierbei mit dem Wärmeinhalt eines Anodenabgases beheizt.

Vorzugsweise ist zum Reformieren des Brenngases für eine elektrochemische Reaktion ein innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls angeordneter Reformer vorgesehen. Dieser interne Reformer ist wenigstens mit einem Teil seines Bereiches in dem die Reformierung stattfindet beispielsweise in dem Anodenteil des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls integriert. Durch diese Maßnahme entfällt ein externer Reformer, der nicht innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls angeordnet ist.

Insbesondere ist wenigstens ein Wärmetauscher in dem Abweg des Anodenteils zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Anodenabgases über einen Zuweg an den innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls angeordneten Reformer vorgesehen.

In einer weiteren Ausgestaltung ist ein Shift-Reaktor zur Erzeugung von Wasserstoff $\rm H_2$ im Abweg des Anodenteils angeordnet. Durch den Shiftreaktor wird zusätzlicher Wasserstoff $\rm H_2$ erzeugt.

7

Vorzugsweise ist der Shift-Reaktor zur Erzeugung von Wasserstoff $\rm H_2$ zwischen den beiden Warmetauschern in dem Abweg des Anodenteils angeordnet.

In einer weiteren Ausgestaltung ist wenigstens ein Wärmetauscher in einem Abweg des Kathodenteils zur Abgabe des Wärmeinhaltes eines Kathodenabgases vorgesehen.

Vorzugsweise ist ein Reformer außerhalb des Hochtemperatur-10 Brennstoffzellenmoduls in einem Zuweg für den Anodenteil angeordnet.

Insbesondere ist ein Abweg des Kathodenteils zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Kathodenabgases an den Reformer vorgesehen.

4 4 7 14

- 1

, y, <u>y</u>

In einer weiteren Ausgestaltung ist im Abweg des Kathodenteils ein Abzweig zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Kathodenabgases an den Reformer vorgesehen.

20

30

35

15

Vorzugsweise ist der Abweg des Anodenteils zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Anodenabgases an den externen Reformer vorgesehen.

25 Zur weiteren Erläuterung der Erfindung wird auf die Ausführungsbeispiele der Zeichnung verwiesen. Es zeigen:

FIG 1 und FIG 2 Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlagen gemäß der Erfindung in schematischer Darstellung.

Gemäß FIG 1 umfaßt eine Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage 2 ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul 4 mit einem Reformer 5 zur Reformierung eines Brenngases für das Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul 4.

8

Das Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul 4 umfaßt einen Anoden- 20 und einen Kathodenteil 22. Der Reformer 5 ist dabei in den Anodenteil 20 integriert. In einer nicht dargestellten Ausführungsform befindet sich der Reformer 5 außerhalb des Anodenteils 20 aber innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4.

Außerdem umfaßt die Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage 2 einen Anodenweg 6, der wiederum einen Zuweg 8 zum Anodenteil 20 des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 und einen Abweg 10 vom Anodenteil 20 des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 umfaßt, und einen Kathodenweg 12, der einen Zuweg 14 zum Kathodenteil des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 und einen Abweg 16 vom Kathodenteil des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 umfaßt.

15

20

30

Ein kohlenwasserstoffhaltiger Brennstoff wird über den Zuweg 8 des Anodenweges 6 in den Reformer 5 des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 eingespeist und reformiert. Das bei der Reformierung entstehende Brenngas wird anschließend in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul 4 teilweise der elektrochemischen Reaktion unterzogen.

Bei der Reformierung in dem Reformer 5 wird mehr Brenngas reformiert als bei der elektrochemischen Reaktion in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul 4 verbraucht wird. In Summe werden wenigstens 10 bis 30% der Brenngasleistung in Überschußwasserstoff H₂ umgesetzt, insbesondere bei Zellspannungen kleiner 0.8V. Die theoretische Obergrenze liegt beispielsweise bei der Reformierung von Methan bei 85 bis 55% bei Zellspannungen von 0.5 bis 0.8V. Dadurch wird ein Über-

9

schuß an Wasserstoff H_2 erzeugt, der über den Abweg 10 des Anodenweges 6 des Anodenteils 20 einer Vorrichtung 70 für eine weitere Verwendung zugeführt wird. Bei der Vorrichtung 70 kann es sich um einen Speicher oder einen Verbraucher handeln, der beispielsweise wiederum ein Bestandteil der gesamten Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage sein kann.

In dem Zuweg 8 sind in Durchflußrichtung der Reihenfolge nach ein Wärmetauscher 24, ein Wassereinspritzer 26 und ein weiterer Wärmetauscher 28 angeordnet. Der kohlenwasserstoffhaltige Brennstoff wird in den Wärmetauschern 24, 28 erwärmt und im Wässereinspritzer 26 mit Wasserdampf befeuchtet.

In dem Abweg 10 des Anodenteils 20 des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 sind in Durchflußrichtung der Reihenfolge nach der Wärmetauscher 28, ein Shift-Reaktor 30, ein zusätzlicher Wärmetauscher 32, ein Wasserabscheider 34, der Wärmetauscher 24, eine Wasserstoffabtrennvorrichtung 36 und die Vorrichtung 70 angeordnet.

7

ŧζ

4.3

20

30

10

15

In dem Anodenabgas in dem Abweg 10 sind im wesentlichen Kohlenmonoxid CO, Wasserstoff H₂, Wasser H₂O und Kohlendioxid CO₂ enthalten. Der in dem Anodenabgas enthaltene Anteil an Kohlenmonoxid CO und Wasserstoff H₂ hat typischerweise mehr als 10 bis 30% des Heizwertes der dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul 4 mit dem Brennstoff über den Zuweg 8 zugeführten Kohlenwasserstoffe.

Das Anodenabgas in dem Abweg 10 des Anodenteils 20 überträgt einen Teil seines Wärmeinhaltes in dem Wärmetauscher 28 an den Brennstoff für den Anodenteil 20 in dem Zuweg 8 des Anodenweges 6. Dem Wassereinspritzer 26 in dem Zuweg 8 wird Wasser über eine Leitung 50 zugeführt.

10

In Durchflußrichtung des Wassers sind in der Leitung 50 eine Pumpe 52, ein weiterer Wärmetauscher 44 und der Wärmetauscher 32 angeordnet.

In dem Shift-Reaktor 30, der bevorzugt auch in die benachbarten Wärmetauscher 28, 32 integriert sein kann, wird ein Großteil des Kohlenmonoxids CO mit dem Wasser H₂O des Anodenabgases zu Kohlendioxid CO₂ und Wasserstoff H₂ umgewandelt. Eine Shiftreaktion für die Umwandlung von Kohlenmonoxid CO und Wasser H₂O zu Kohlendioxid CO₂ und Wasserstoff H₂ findet nicht nur in dem Shift-Reaktor 30 statt, sondern erfolgt teilweise auch auf der gesamten Länge des Abweges 10 des Anodenteils 20. Demzufolge dient der gesamte Abweg 10 des Anodenteils 20 zur Anreicherung von Wasserstoff H₂ aus dem Anodenabgas.

Anschließend überträgt das Anodenabgas in dem Wärmetauscher 32 einen weiteren Teil seines Wärmeinhalts an das Wasser in der Leitung 50.

20

30

35

Ein Anteil von Wasser wird in dem Wasserabscheider 34 aus dem Anodenabgas entfernt. Einen weiteren Anteil seines Wärmeinhaltes überträgt das Anodenabgas in dem Wärmetauscher 24 an den Brennstoff in dem Zuweg 8 für den Anodenteil 20 des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4. In dem Wasserstoffabtrennvorrichtung 36 werden alle neben dem Wasserstoff H₂ in dem Anodenabgas vorhandenen Komponenten abgetrennt, so daß in dem letzten Teil des Abweges 10 im wesentlichen nur noch der Wasserstoff H₂ vorhanden ist und anschließend der Vorrichtung 70 zugeführt wird.

Ein Oxidanz, beispielsweise Luft oder Sauerstoff, wird über den Zuweg 14 des Kathodenweges 12 dem Kathodenteil 22 des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 zugeführt. In Durchflußrichtung sind in dem Zuweg 14 ein Verdichter 40 und ein PCT/DE96/02237 WO 97/21257

11

Wärmetauscher 42 angeordnet. Das Oxidanz wird in dem Verdichter 40 komprimiert, wobei zusätzlich die notwendige Durchflußmenge an Oxidanz eingestellt werden kann, und anschließend in dem Wärmetauscher 42 erwärmt.

5

10

15

Nach erfolgter Reaktion in dem Kathodenteil 22 des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 wird das Kathodenabgas über den Abweg 16 des Kathodenteils 22, in dem die Wärmetauscher 42, 44 angeordnet sind, der Außenluft zugeführt. In dem Wärmetauscher 42 überträgt das erwärmte Kathodenabgas des Kathodenteils 22 einen Teil seines Wärmeinhaltes an das Oxidanz in dem Zuweg 14 für den Kathodenteil 22.

Der Einsatz der Wärmetauscher 24, 28, 32, 42 und 44 bewirkt, daß der Wärmeinhalt des Kathoden- und Anodenabgases des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 zur Brennstoff- und Oxidanzvorwärmung und damit zur Reformierung verwendet wird.

A STATE OF

11 15

ist in dem Zuweg 8 für den Anodenteil 20 in Durchflußrichtung hinter dem Wassereinspritzer 26 ein Reformer 62 außerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 angeordnet. Die Wärmetauscher 24, 28 der Ausführungsform in Figur 1 entfallen. Im Gegensatz zu der Ausführungsform in Figur 1 wird das Brenngas nicht mehr innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls 4 reformiert, sondern in dem externen Reformer 62, so daß das Brenngas bereits zumindest teilweise reformiert ist bevor es in den Anodenteil 20 eingespeist wird.

Das Abgas des Anodenteils 20 gibt über den Abweg 10 einen Teil seines Wärmeinhaltes an den Reformer 62 ab. Hinter dem Reformer 62 ist in dem Abweg 10 des Anodenteils 20 ein Verdampfer 64 angeordnet, in dem das Abgas einen weiteren Teil seines Wärmeinhaltes an den Wasserdampf zum Befeuchten des Brennstoffes für den Reformer 62 überträgt. Anschließend

12

durchläuft das Abgas des Anodenteils 20 die Wasserstoffabtrennvorrichtung 36, wobei hinter der Wasserstoffabtrennvorrichtung 36 nur noch Wasserstoff $\rm H_2$ in dem Anodenabgas vorhanden ist und der Vorrichtung 70 zugeführt wird.

5

10

Das Kathodenabgas wird über den Abweg 16 des Kathodenteils 22, in dem der Wärmetauscher 42 angeordnet ist, dem externen Reformer 62 zugeführt. Nach Abgabe eines Teiles seines Wärmeinhaltes zum Reformieren des Brenngases für den Anodenteil 20 durchläuft das Kathodenabgas den Verdampfer 64, wo ein weiterer Teil seines Wärmeinhaltes an das Wasser für die Befeuchtung des Brennstoffes für den Reformer 62 abgegeben wird. Anschließend wird das Kathodenabgas, das im wesentlichen Luft enthält, an die Außenluft abgegeben.

15

20

Aus dem Abweg 16 des Kathodenteils 22 zweigt ein Abzweig 72 zwischen dem Kathodenteil 22 und dem Wärmetauscher 42 ab. Der Abzweig 72 speist einen Teil des Kathodenabgases des Kathodenteils 22 zur Abgabe seines Wärmeinhaltes direkt in den externen Reformer 62 ein. Nachdem ein Teil seines Wärmeinhaltes abgegeben worden ist durchläuft dieser Anteil des Kathodenabgases den Verdampfer 64 und wird anschließend ebenfalls an die Außenluft abgegeben.

3.5

Patentansprüche

- Verfahren zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzellenmozellenanlage (2), die ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) mit einem Anoden- (20) und einem Kathodenteil (22) umfaßt, wobei das für die elektrochemische Reaktion erforderliche Brenngas durch einen Reformierungsprozeß erzeugt wird, wobei mehr Wasserstoff H2 erzeugt wird, als bei der elektrochemischen Reaktion in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) verbraucht wird, und der in dem Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) nicht verbrauchte Wasserstoff H2 für eine weitere Nutzung außerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls (4) vorgesehen ist.
- 2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem wenigstens 30% der Brenngasleistung zum Erzeugen des nicht verbrauchten Wasserstoffes H₂ verwendet werden.
- 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, bei dem der Wärmeinhalt aus der elektrochemischen Reaktion im Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls (4) zum Reformieren des Brenngases verwendet wird.
- Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei dem
 das Brenngas innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls (4) reformiert wird.
- Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, bei dem das Brenngas vor dem Eintreten in das Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) reformiert wird.
 - 6. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2), die wenigstens ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) mit einem Anoden- (20) und einem Kathodenteil (22) umfaßt, bei der eine als Speicher vorgesehene Vorrichtung (70) in einem Abweg (10) des Anodenteils (20) angeordnet ist.

- 7. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2), die wenigstens ein Hochtemperatur-Brennstoffzellenmodul (4) mit einem Anoden- (20) und einem Kathodenteil (22) umfaßt, bei der eine als Verbraucher vorgesehene Vorrichtung (70) in einem Abweg (10) des Anodenteils (20)angeordnet ist.
- 8. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach einem der Ansprüche 6 oder 7, bei der zum Reformieren des Brenngases für die elektrochemische Reaktion ein innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls (4) angeordneter Reformer (5) vorgesehen ist.

10

- 9. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach Anspruch 8, bei der wenigstens ein Wärmetauscher (24, 28, 32) in dem Abweg (10) des Anodenteils (20) zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Anodenabgases über einen Zuweg (8) an den innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls (4) angeordneten Reformer (5) vorgesehen ist.
- 20 10. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach Anspruch 9, bei der ein Shift-Reaktor (30) zur Erzeugung von Wasserstoff H₂ im Abweg (10) des Anodenteils (20) angeordnet ist.
- 11. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach Anspruch
 25 10, bei der der Shift-Reaktor (30) zwischen den beiden Wärmetauschern (28, 32) im Abweg (10) des Anodenteils (20) angeordnet ist.
- 12. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach einem der 30 Ansprüche 8 bis 11, bei der wenigstens ein Wärmetauscher (42, 44) in einem Abweg (16) des Kathodenteils (22) zur Abgabe des Wärmeinhaltes eines Kathodenabgases vorgesehen ist.
- 13. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach einem der 35 Ansprüche 6 oder 7, bei der ein Reformer (62) außerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenmoduls (4) in einem Zuweg (8) für den Anodenteil (20) angeordnet ist.

PCT/DE96/02237

14. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach Anspruch 13, bei der der Abweg (16) des Kathodenteils (22) zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Kathodenabgases an den Reformer (62) vorgesehen ist.

5

15. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach Anspruch 14, bei der im Abweg (16) des Kathodenteils (22) ein Abzweig (72) zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Kathodenabgases an den Reformer (62) vorgesehen ist.

10

16. Hochtemperatur-Brennstoffzellenanlage (2) nach Anspruch 13, bei der der Abweg (10) des Anodenteils (20) zur Übertragung des Wärmeinhaltes eines Anodenabgases an den Reformer (62) vorgesehen ist. THIS PAGE BLANK (USPTO)

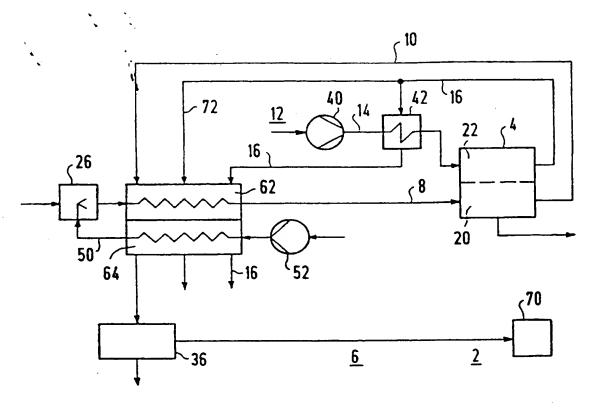


FIG 2

